

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of: **Hiroshi OKAMOTO, et al.**

Serial Number: **09/771,700**

Group Art Unit: **1773**

Filed: **January 30, 2001**

For: **FUNCTIONAL COMPOSITION, FUNCTIONAL RESIN COMPOSITION, AND
FUNCTIONAL MOLDING**

CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119

Commissioner for Patents
Washington, D. C. 20231

Date: June 6, 2001

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application is hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:


JAPANESE APPLICATION NO. 2000-025730 Filed February 2, 2000

In support of this claim, the requisite certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the applicants have complied with the requirements of 35 U.S.C. 119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of a said document. In the event that any fees are due in connection with this paper, please charge our Deposit Account No. 01-2340.

Respectfully submitted,

ARMSTRONG, WESTERMAN, HATTORI,
McLELAND & NAUGHTON, LLP


Le-Nhung McLeland
Attorney for Applicants
Reg. No. 31,541

Atty. Docket No. 010064
1725 K Street, N.W., Suite 1000
Washington, DC 20006
Tel: (202) 659-2930
Fax: (202) 887-0357
LNM/ll

RECEIVED
JUN - 8 2001
TC 1760 MAIL ROOM



#2
JLW
6-13-01



日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 2月 2日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-025730

出 願 人

Applicant(s):

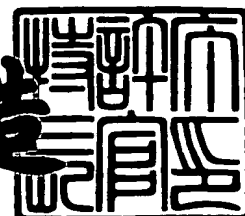
株式会社エルブ

RECEIVED
JUL 11 - 8 2001
TC 1700 MAIL ROOM

2001年 1月26日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3000324

【書類名】 特許願

【整理番号】 P2305

【提出日】 平成12年 2月 2日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 A61L 9/00
D01F 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県尾張旭市旭台 3 - 1 4 - 7

【氏名】 岡本 弘

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県常滑市千代ヶ丘 5 丁目 1 番地

【氏名】 井上 眞一

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県大津市湖城ヶ丘 8 - 1

【氏名】 金川 哲夫

【発明者】

【住所又は居所】 静岡県浜松市大山町 4 0 8 3 - 1

【氏名】 佐野 昌隆

【発明者】

【住所又は居所】 静岡県浜松市寺島町 6 3 1 番地

【氏名】 宮松 宏樹

【発明者】

【住所又は居所】 静岡県浜松市龍禅寺町 5 3 6 番地

【氏名】 吉田 貴美

【特許出願人】

【識別番号】 596087812

【氏名又は名称】 株式会社エルブ

【代表者】 宮松 宏樹

【代理人】

【識別番号】 100087882

【弁理士】

【氏名又は名称】 大石 征郎

【電話番号】 06-6305-5587

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 007456

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9803430

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 機能性組成物、機能性樹脂組成物および機能性成形物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

植物由来の機能性成分(A) と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T) と、その微粉板状鉱物(T) 以外のセラミックス成分(C) との混合物からなる機能性組成物。

【請求項 2】

植物由来の機能性成分(A) が、カテキン類、サポニン類、茶葉粉末、茶葉抽出物およびタンニン(酸) よりなる群から選ばれた少なくとも 1 種の成分である請求項 1 記載の機能性組成物。

【請求項 3】

セラミックス成分(C) が、含水ケイ酸ゲルを経て得られるシリカゲル、無機質焼結助剤－無機質凝集剤を組み合わせたもの、微粉板状鉱物(T) 以外のセラミックス粒子－無機質焼結助剤－無機質凝集剤を組み合わせたもの、または、水膨潤性粘土鉱物である請求項 1 記載の機能性組成物。

【請求項 4】

植物由来の機能性成分(A) と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T) と、その微粉板状鉱物(T) 以外のセラミックス成分(C) と、樹脂(R) とからなる機能性樹脂組成物。

【請求項 5】

植物由来の機能性成分(A) と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T) と、その微粉板状鉱物(T) 以外のセラミックス成分(C) とが配合された樹脂(R) の成形物からなる機能性成形物。

【請求項 6】

内側成分 X と外側成分 Y とで構成された芯鞘接合型またはバイメタル接合型の複合成形物であって、

これら内側成分 X、外側成分 Y の樹脂成分がそれぞれ第 1 樹脂(R_1)、第 2 樹脂(R_2) からなり、これら第 1 樹脂(R_1) と第 2 樹脂(R_2) とは同種または異種の樹脂で

あること、

前記の内側成分 X の第 1 樹脂 (R_1) および外側成分 Y の第 2 樹脂 (R_2) の少なくとも一方に、植物由来の機能性成分 (A) と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物 (T) と、その微粉板状鉱物 (T) 以外のセラミックス成分 (C) とが配合されていること

を特徴とする請求項 5 記載の接合型の機能性成形物。

【請求項 7】

植物由来の機能性成分 (A) とセラミックス成分 (C) とが、両者の複合体粒子の形態で配合されている請求項 5 または 6 記載の機能性成形物。

【請求項 8】

植物由来の機能性成分 (A) と、セラミックス成分 (C) と、微粉板状鉱物 (T) とが、これらの複合体粒子の形態で配合されている請求項 5 または 6 記載の機能性成形物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、植物由来の機能性成分と特定の鉱物成分とからなる消臭性、抗微生物性等の性質を有する機能性組成物に関するものである。またその機能性組成物を含む機能性樹脂組成物および機能性成形物に関するものである。

【0002】

【従来技術】

空調機や空気清浄機に組み込むフィルタとして、コスト的に有利でかつ成形性、機械的強度、耐水性、耐薬品性などの特性がすぐれているポリプロピレン線条でできたフィルタが汎用されている。このフィルタ用のポリプロピレンに、合成系の抗菌剤を練り込んだり、茶の抽出成分であるカテキン類を外的に付着担持または内添により担持させたりすることも知られている。

【0003】

たとえば、特開平 1 - 9 9 6 5 6 号公報には、0.1%以上の抗菌剤を練り込んだポリプロピレン繊維からなる抗菌エレクトレットフィルタにつき言及がある。

ただしこの公報の実施例で使用している抗菌剤は、合成系の抗菌剤であるチアベンダゾールである。

【 0 0 0 4 】

特開平 7 - 1 4 8 4 0 7 号公報には、茶の抽出成分を有効成分とするウィルス不活性剤をフィルタに含浸またはフィルタ素材に練り込んだ抗ウィルスフィルタが示されている。茶の抽出成分とは、カテキン類などの茶ポリフェノールである。その実施例には、（イ）茶の抽出成分を水に溶解して水溶液としてからエレクトレットフィルタに含浸付着させた例、（ロ）茶の抽出成分をポリプロピレンに混合して溶融してフィルム状に成形し、カッティングし、不織布化を行った例、があげられている。

【 0 0 0 5 】

特開平 8 - 2 6 6 8 2 8 号公報には、集塵フィルタと茶の抽出成分を添着したフィルタとからなる抗ウィルスフィルタが示されている。茶の抽出成分とは、カテキン類などの茶ポリフェノールである。茶の抽出成分を添着したフィルタとは、エレクトレットフィルタ、H E P A フィルタ、高性能フィルタ、中性能フィルタ、バグフィルタなどである。

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】

茶の抽出成分を水に溶解して水溶液としてからフィルタに外的に含浸担持させた場合、つまり含浸による付着担持方法にあっては、茶の抽出成分が水になじみがあるため抽出成分の固着性も耐水性も不足し、水分と接触する使い方をしたり時々水洗を行うような使い方をしたときには、付着成分である茶の抽出成分が容易に失われてしまうという問題点がある。

【 0 0 0 7 】

カテキン類などの茶の抽出成分をフィルタ素材としてのポリプロピレンに内添して（練り込んで）溶融成形する方法にあっては、本来水溶性であるカテキン類などの茶の抽出成分が非極性の樹脂であるポリプロピレンに馴染みがないため、フィラメント表面にブリードして汚れを生じやすく、またそのフィラメントを水中に浸漬したり水洗したりしたときは、抽出成分の大部分が溶出して効果が激減

してしまう。ブリードを見込んで内添量を多くしても、依然として水と接触したときの溶出量が大きい上、コスト高になり、また紡糸性、延伸性、強度が低下することを免れない。加えてこの内添法にあっては、熔融成形に際して、茶の抽出成分のうち有効な部分の相当量が揮散してしまい、比較的高価な有効成分が目減りすることを免れない。

【0008】

本発明者らは、樹脂成分にカテキン類、サポニン類などの機能性成分を内添して成形するに際し、特定のセラミックス成分を共存させると、機能性成分との間で相互作用を生じ、その結果、成形が円滑に行われ、機能性成分の成形物表面へのブリードが抑制され、さらには得られた成形物を水と接触する用途に用いても機能性成分の溶出が効果的に抑制されることを見い出し、別途特許出願を行っている。また本発明者らは、この技術を複合フィラメントなど複合成形物の外側成分に適用すると、一段と好ましい結果が得られることを見い出し、それについても別途特許出願を行っている。

【0009】

しかしながら、本発明者らによる上記技術にあっても、機能性成分とセラミックス成分との混合粒子の調製工程（殊に両者の複合体粒子の調製工程）においてあるいはその混合粒子を樹脂に配合して成形するときの樹脂相中において、粒子が二次凝集して粒径が大きくなり、その混合粒子の内添が成形性、後加工性（延伸性等）、成形物の物性に影響を与え、所期の作用効果が減殺されることがあった。もしこのような問題点が克服されれば、すぐれた機能性を有する成形物が得られることになる。またその解決手段を利用して、その混合粒子の成形物以外の用途への応用も期待される。

【0010】

本発明は、このような背景下において、植物由来の機能性成分とセラミックス成分との混合系における粒子の二次凝集による粒径の増大を有効に防止した機能性組成物を提供すること、その混合粒子からなる機能性組成物を用いた種々の用途に応用できる機能性樹脂組成物を提供すること、そして特に、その混合粒子からなる機能性組成物を用いた、消臭性や抗微生物性、成形性、後加工性（延伸性

等)、物性などの点ですぐれた機能性成形物を提供することを目的とするものである。

【0011】

【課題を解決するための手段】

本発明の機能性組成物は、植物由来の機能性成分(A)と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)との混合物からなるものである。

【0012】

本発明の機能性樹脂組成物は、植物由来の機能性成分(A)と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)と、樹脂(R)とからなるものである。

【0013】

本発明の機能性成形物は、植物由来の機能性成分(A)と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)とが配合された樹脂(R)の成形物からなるものである。

【0014】

【発明の実施の形態】

以下本発明を詳細に説明する。

【0015】

《機能性組成物》

上記のように、本発明の機能性組成物は、植物由来の機能性成分(A)と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)との混合物からなる。

【0016】

〈機能性成分(A)〉

機能性成分(A)としては、植物由来のものであれば、種々のものを用いることができる。機能性成分(A)の代表例は、カテキン類、サポニン類、茶葉粉末、茶葉抽出物およびタンニン(酸)よりなる群から選ばれた少なくとも1種が用いられ、特にカテキン類が重要である。これらは、消臭性(脱臭性、悪臭消去性、有

害ガス成分除去性等)、抗微生物性(抗菌性、殺菌性、静菌性、抗カビ性、抗ウイルス性等)、生理活性(抗アレルギー性等)、抗酸化性などの機能性を有する成分である。機能性成分(A)としては、そのほか、各種の植物の精油や、生薬ないし漢方薬に利用される各種の植物の抽出物も用いることができる。

【0017】

上記のうちカテキン類としては、モノマー状のものやオリゴマー状のものが用いられる(テアフラビンも含まれるものとする)。本発明において用いるカテキン類として特に重要性の高いものは、カテキン類の濃度を高めた茶由来のカテキン製剤である。茶カテキンの主たる成分は、エピガロカテキン、エピガロカテキンガレート、エピカテキン、エピカテキンガレートなどであるが、個々の成分に単離する必要はないので、これらの混合物からなる茶カテキンを濃厚に含む製剤(殊に20%以上、好ましくは25%以上含むもの)をそのまま好適に用いることができる。市販の茶由来のカテキン製剤には30%品、50%品、60%品、70%品、80%品、90%品などがあるので、その入手は容易である。茶は、緑茶のみならず、発酵茶である紅茶や半発酵茶であるウーロン茶などであってもよい。たとえば紅茶の場合、発酵過程の中で、エピガロカテキン、エピガロカテキンガレート、エピカテキン、エピカテキンガレートから、各種のテアフラビン(紅茶ポリフェノール)が作られる。またたとえばウーロン茶の場合、4種の主要カテキン以外に、エピガロカテキン-4-O-メチルガレートなどのような特殊なカテキン誘導体も含まれている。なおカテキン類は、阿仙薬をはじめ茶以外の多種の植物にも含まれているので、それらの植物由来のカテキン類を用いることもできる。

【0018】

サポニン類のうち茶サポニンは、有機溶剤や水を用いて茶葉や茶の種子からサポニンを含む成分を抽出し、ついでカラムクロマトなどの手段を用いて繰り返し精製を行うことにより取得できる。茶サポニンには、ステロイド系サポニン、トリテルペノイド系サポニンなどがあるが、本発明の目的にはこれらをいずれも使用することができる。サポニン類は、茶以外の多種の植物、たとえば、ニンジン、チクセツニンジン、ダイズ、サイコ、アマチャヅル、ヘチマ、オンジ、キキョ

ウ、セネガ、バクモンドウ、モクツウ、チモ、ゴシツ、カンゾウ、サンキライなどにも含まれているので、そのような植物からのサポニン類を用いることもできる。

【0019】

茶葉粉末または茶葉抽出物としては、一番茶・二番茶・三番茶・深むし、かぶせ、紅茶、ウーロン茶などの茶の粉末または抽出物を用いることができる。

【0020】

タンニン（酸）としては、市販の精製されたタンニン酸を用いることができ、また五倍子、没食子などタンニン酸含有天然植物の抽出物またはその半精製物をそのまま用いることもできる。

【0021】

〈微粉板状鉱物(T)〉

微粉板状鉱物(T)としては、低硬度で劈開性を有する板状鉱物が用いられる。低硬度とは、モース硬度で 3.5程度以下である。平均粒径については、 $5\mu\text{m}$ 以下、 $2\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $1.5\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $1\mu\text{m}$ 以下、なかんずくサブミクロンオーダー（ $1\mu\text{m}$ 未満）というように、細かければ細かいほど好ましい。特にサブミクロンオーダーの超微粉グレードのものが推奨される。ここで平均粒径は、レーザー回折法により測定されたものとする。

【0022】

低硬度で劈開性を有する板状鉱物の代表例はタルクとマイカであるが、超微粉にすることは容易ではないので、超微粉グレードのものを用いるときは、種々の手段を講じて粉砕を行い、あるいは粉砕物のうち特に微粉の部分のみを分級により取得し、できるだけ粒径が小さいものを得るようにする。

【0023】

ここでタルクは、滑石と呼ばれる鉱石の粉砕物であって、白色～灰色の滑りのある脂肪感ある無機質粉末である。タルクの化学組成は、産地によって多少異なるものの、基本的には $4\text{SiO}_2 \cdot 3\text{MgO} \cdot \text{H}_2\text{O}$ で表わされる。タルクの結晶構造は、表面にケイ酸、2層目に水酸基を持ったマグネシア、3層目にケイ酸となった3層構造となっている。この特異な結晶構造に起因して、タルクは滑りやすい性質

を有しており、また無機質鉱物の中では、モース硬度が1と最も硬度が低いものである。

【0024】

超微粉化に成功した市販品の一例は、日本タルク株式会社製の平均粒径 $0.97\mu\text{m}$ のタルクである「SG-2000」であり、2, 3の海外品も入手できる。これらをさらに分級すれば、希望の粒径のものを準備することができる。なお、タルク業界では「 $3\mu\text{m}$ の壁」と言われる限界があり、レーザー回折法による平均粒径が $3\mu\text{m}$ を切るタルクを工業的規模で得ることは容易ではなく、ましてサブミクロンのオーダーのタルクを得ることはごく最近まで不可能とされていた。

【0025】

マイカとしては、天然または合成マイカ、より詳しくは、絹雲母（セリサイト）、白雲母（マスコバイト）、金雲母（フロゴバイト）、フッ素金雲母、着色元素が結晶中に配位した着色マイカ、雲母チタン、紫外線吸収マイカなどがあげられる。マイカの硬度は、モース硬度で2.5~3.2程度のものが多い。

【0026】

<セラミックス成分(C)>

セラミックス成分(C)としては、上述の微粉板状鉱物(T)以外の種々のセラミックスが用いられる。この場合、以下に詳述するように、含水ケイ酸ゲルを経て得られるシリカゲル、無機質焼結助剤—無機質凝集剤を組み合わせたもの、または、セラミックス粒子（粒子微粉板状鉱物(T)以外のもの、以下単にセラミックス粒子ということがある）—無機質焼結助剤—無機質凝集剤を組み合わせたものが特に好適に用いられる。これらを用いれば、凝集力を利用して機能性成分(A)との複合化を図ることができる。

【0027】

シリカゲルとしては、含水ケイ酸ゲルを経て得られるシリカゲルが好適に用いられる。このときには、ケイ酸塩の水溶液を酸と混合することによりpHを調整して含水ゲルとなし、さらにこの含水ゲルを水洗してイオンを除去してから乾燥することによりシリカゲルを得る。ケイ酸塩としては、 $\text{Na}_2\text{O} \cdot n \text{SiO}_2$ で表わされるケイ酸ナトリウムや、 $\text{K}_2\text{O} \cdot n \text{SiO}_2$ で表わされるケイ酸カリウムが用いられ、

特に前者のケイ酸ナトリウムが重要である。ケイ酸塩の濃厚水溶液は一般に水ガラスと呼ばれ、市販の代表的な水ガラスの SiO_2 含有量は22～38重量%、 Na_2O 含有量は5～19重量%である。

【0028】

無機質焼結助剤としては、リン酸、硫酸、硝酸、炭酸などの無機酸の多価金属塩、アルカリ金属やアルカリ土（類）金属のフッ化物やケイフッ化物があげられる。多価金属塩としては、アルミニウム、亜鉛、マグネシウム、カルシウム、マンガンなどが好適に用いられ、これらは通常は含水塩ないし水和物を水に溶解した形で使用に供される。

【0029】

無機質凝集剤としては、ゾル状または溶液状の無機質凝集剤、殊に、ゾル状の無水ケイ酸または溶液状のケイ酸塩（ケイ酸ナトリウムやケイ酸カリウム）が好適に用いられる。ゾル状の無水ケイ酸には、水を媒体とする通常のコロイダルシリカのほか、アルコール等の有機溶媒を媒体とするオルガノシリカゾルがある。

【0030】

セラミックス粒子－無機質焼結助剤－無機質凝集剤におけるセラミックス粒子としては、各種の粘土鉱物、酸化物、水酸化物、複合酸化物、窒化物、炭化物、ケイ化物、ホウ化物、ゼオライト、クリストバライト、ケイ藻土、ケイ酸の多価金属塩などがあげられる。粘土鉱物としては、カオリン、ベントナイトなどがあげられる。酸化物としては、アルミナ、チタニア、シリカ、ジルコニア、マグネシア、酸化亜鉛などが例示される。このうち酸化亜鉛は、それ自身がある程度の消臭能力を有するものである。水酸化物としては、アルミニウム、亜鉛、マグネシウム、カルシウム、マンガンの水酸化物などがあげられる。複合酸化物の例はミョウバンである。窒化物の例は、窒化ケイ素、窒化ホウ素などである。炭化物の例は、炭化ケイ素、炭化ホウ素などである。ケイ酸の多価金属塩としては、アルミニウム塩、亜鉛塩、マグネシウム塩、カルシウム塩、マンガン塩などがあげられる。

【0031】

各成分の割合は、無機質焼結助剤－無機質凝集剤の組み合わせにあっては、無機質焼結助剤の固形分100重量部に対し、無機質凝集剤が固形分で100～300重量部程度あるいはそれ以上とすることが多い。セラミックス粒子－無機質焼結助剤－無機質凝集剤の組み合わせにあっては、セラミックス粒子を主体とし、無機質焼結助剤および無機質凝集剤はそれぞれの役割を発揮する量とするが、セラミックス粒子100重量部に対し、無機質焼結助剤が固形分で0.5～20重量部程度、無機質凝集剤が固形分で0.5～25重量部程度とすることが多い。

【0032】

セラミックス成分(C)としては、そのほか、水を吸って膨潤する性質を有する粘土鉱物、たとえば、セピオライト、バーミキュライト、ペントナイト、セリサイト粘土、水膨潤性グレードのマイカなどを用いることも好ましい。これらの中では、特異な繊維状構造を有するセピオライトが特に重要である。

【0033】

〈機能性成分(A)とセラミックス成分(C)との複合体粒子〉

機能性成分(A)とセラミックス成分(C)とは、両者の複合体粒子を製造しておいてから、それぞれの用途に用いることが好ましい。なお、このとき微粉板状鉱物(T)を含む状態の複合体粒子とすることが好ましいが、これについては後述するので、ここでは機能性成分(A)とセラミックス成分(C)との関係について述べることにする。

【0034】

このような複合体粒子を製造する場合、セラミックス成分(C)が含水ケイ酸ゲルを経て得られるシリカゲルであるときは、ケイ酸塩水溶液と酸との混合前、混合時または混合後のゲル化反応完了前に機能性成分(A)を添加して、その機能性成分(A)をシリカゲル中に含有させることが望ましい。このようにすると、機能性成分(A)を含有する状態でセラミックスを凝集させることができる。

【0035】

セラミックス成分(C)が無機質焼結助剤－無機質凝集剤を組み合わせたものである場合、機能性成分(A)を含有する状態でセラミックスを凝集させることが好ましい。例をあげると、無機質焼結助剤の一例としてのリン酸アルミニウムの水

溶液に機能性成分(A)を粉末であるいは水溶液またはアルコール溶液として混合し、pHを3～4に調整して、無機質凝集剤の一例としてのコロイダルシリカのコロイド液を混合して系のpHを中性程度にもっていくと、凝集が起こるので、その凝集物をルツボや蒸発皿に移し、乾燥器または電気炉にて乾燥するまで加熱処理する。

【0036】

セラミックス成分(C)がセラミックス粒子－無機質焼結助剤－無機質凝集剤を組み合わせたものであるときも、機能性成分(A)を含有する状態でセラミックスを凝集させることが好ましい。例をあげると、ケイ酸アルミニウム、アルミナ、チタニア等のセラミックス粒子に無機質焼結助剤の一例としてのリン酸アルミニウムの水溶液を硬練りペースト程度の粘度になるように加えて混練し、続いて機能性成分(A)を粉末であるいは水溶液またはアルコール溶液として混合し（あるいはセラミックス粒子に機能性成分(A)を混合しておいてから無機質焼結助剤を混練し）、また必要に応じてリン酸アルミニウムの水溶液を追加混合し、pHを3～4に調整して、無機質凝集剤の一例としてのコロイダルシリカのコロイド液を混合して系のpHを中性程度にもっていくと、凝集が起こるので、その凝集物をルツボや蒸発皿に移し、乾燥器または電気炉にて乾燥するまで加熱処理する。

【0037】

〈微粉板状鉱物(T)の配合の時機〉

微粉板状鉱物(T)の配合は、先に述べた機能性成分(A)とセラミックス成分(C)との複合体粒子の製造工程中またはその複合体粒子を製造した後の粉碎工程において行うことが特に望ましい。

【0038】

〈各成分の割合〉

機能性成分(A)、微粉板状鉱物(T)、セラミックス成分(C)の割合は広い範囲から選択可能であるが、これらの合計量を100重量%とすると、機能性成分(A)が0.1～60重量%（殊に0.5～50重量%）で、残余が微粉板状鉱物(T)とセラミックス成分(C)とであることが好ましい。機能性成分(A)の合計量が余

りに少ないときは所期の消臭性、抗微生物性、生理活性、抗酸化性などの機能性が充分には発揮されず、一方機能性成分(A)の合計量を余りに多くしても、機能性は一定以上には上がらないばかりでなく、成形物の生産性が低下したり、強度や風合が低下したりするというマイナス面が目立つようになる。

【0039】

微粉板状鉱物(T)とセラミックス成分(C)との関係では、前者および後者の合計量を100重量%とするとき、前者が1～40重量%（殊に2～30重量%）とすることが好ましい。微粉板状鉱物(T)の割合が余りに少ないときは二次凝集を起こして粒径が大になる傾向があり、一方微粉板状鉱物(T)の割合が余りに多いときには、機能性成分(A)に対するバランスを欠くようになり、たとえば水と接触するような使い方をすると、機能性成分(A)の溶出が過多になって、耐久性が損なわれることになる。

【0040】

《機能性樹脂組成物》

本発明の機能性樹脂組成物は、植物由来の機能性成分(A)と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)と、樹脂(R)とからなる。

【0041】

微粉板状鉱物(T)の配合の時機については、機能性成分(A)とセラミックス成分(C)との複合体粒子の製造工程中またはその複合体粒子を製造した後の粉碎工程において微粉板状鉱物(T)を配合したものを作製しておき、その配合物を樹脂(R)を含む系に配合して樹脂組成物を調製することが望ましい。ただし、樹脂組成物の調製前または調製中に、微粉板状鉱物(T)を別個に配合することもできる。

【0042】

樹脂組成物用の樹脂(R)の例としては、成形用の樹脂、塗料用の樹脂、コーティング用の樹脂、インク用の樹脂、接着剤用の樹脂、シール材用の樹脂、化粧品用の樹脂などがあげられる。また観点を変えると、熱可塑性樹脂、熱硬化型樹脂、常温硬化型樹脂、活性エネルギー線硬化型樹脂などがあげられる。そしてその

用途や使い方に応じて、最適の種類樹脂を選択し、その最適用量を用いる。なお「樹脂」の用語の中には、通常の合成樹脂のほか、エラストマーないしゴムや、セルロース系高分子のような高分子も含まれるものとする。

【0043】

これらの樹脂の中では、特に成形用の樹脂が重要であるので、これについては以下に項を改めて詳述する。

【0044】

《機能性成形物》

〈単独成形物、複合成形物〉

本発明の機能性成形物は、植物由来の機能性成分(A)と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)とが配合された樹脂(R)の成形物からなる。

【0045】

この成形物は、通常の単独の成形物であってもよいが、次のように、内側成分Xと外側成分Yとで構成された芯鞘接合型またはバイメタル接合型の複合成形物であってもよい。

【0046】

後者の複合成形物の場合には、内側成分X、外側成分Yの樹脂成分がそれぞれ第1樹脂(R_1)、第2樹脂(R_2)からなる。これら第1樹脂(R_1)と第2樹脂(R_2)とは、同種の樹脂、異種の樹脂のいずれであってもよい。そして、内側成分Xの第1樹脂(R_1)および外側成分Yの第2樹脂(R_2)の少なくとも一方に、植物由来の機能性成分(A)と、粉板状鉱物(T)と、セラミックス成分(C)とが配合される。

【0047】

〈樹脂(R)、第1樹脂(R_1)、第2樹脂(R_2)〉

樹脂(R)、あるいは複合成形物の場合の第1樹脂(R_1)、第2樹脂(R_2)としては、溶融成形が可能な樹脂や、溶液成形またはエマルジョン成形が可能な樹脂が用いられる。なお先にも述べたように、「樹脂」の用語の中には、エラストマーないしゴムや、セルロース系高分子のような高分子も含まれるものとする。溶融成形の場合の成形法としては、押出成形法、射出成形法、圧縮成形法、トランスフ

ァー成形法をはじめとする種々の溶融成形法を採用することができる。

【 0 0 4 8 】

溶融成形が可能な樹脂の例は、ポリオレフィン系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリ塩化ビニル系樹脂、ポリ塩化ビニリデン系樹脂、アクリル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、ポリスチレン系樹脂（ABS樹脂やAS樹脂を含む）、ポリカーボネート系樹脂、エチレンービニルアルコール共重合体系樹脂、各種耐熱性樹脂、各種高強度樹脂などであり、他の種々の溶融成形用樹脂も使用可能である。樹脂には熱可塑性エラストマーも含まれる。

【 0 0 4 9 】

上記のうちポリオレフィン系樹脂としては、エチレンやプロピレンを主体とするオレフィンのホモポリマーやコポリマー、たとえば、低密度ポリエチレン、リニア低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、エチレンー酢酸ビニル共重合体、エチレーアクリレート共重合体、アイオノマー、エチレンを主体とするプロピレン、1ーブテン等との共重合体、エチレンー1ーブテン共重合体、ポリプロピレン、プロピレンを主体とするエチレン、ブテンー1等の α -オレフィンとの共重合体プロピレン共重合体、ポリオレフィン系熱可塑性エラストマーなどがあげられる。ポリアミド系樹脂としては、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン6ー66、ナイロン610、ナイロン612、ナイロン11、ナイロン12、ナイロン46、ナイロンMXD6、ポリアミド系熱可塑性エラストマーなどがあげられる。ポリエステル系樹脂としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエステル系熱可塑性エラストマーなどがあげられる。アクリル系樹脂としては、（メタ）アクリレートや（メタ）アクリロニトリルを主体とするホモポリマーやコポリマーがあげられる。ポリウレタン系樹脂としては、ポリウレタン系熱可塑性エラストマーなどがあげられる。ポリスチレン系樹脂としては、ポリスチレン、ハイインパクトポリスチレン、ABS樹脂、AS樹脂などがあげられる。

【 0 0 5 0 】

溶液成形またはエマルジョン成形が可能な樹脂としては、セルロース系高分子（ビスコースレーヨン、アンモニアレーヨン、アセテート、トリアセテート等）

、アクリロニトリル系ポリマー、ポリウレタン系ポリマー、ポリビニルアルコール系ポリマー、ポリ塩化ビニリデン系ポリマー、ポリ塩化ビニル系ポリマーなどが例示できる。

【0051】

樹脂(R)、第1樹脂(R_1)、第2樹脂(R_2)は、2種以上の樹脂の混合物であってもよい。また先にも述べたように、複合成形物の場合の第1樹脂(R_1)、第2樹脂(R_2)は、同種の樹脂であってもよく、異種の樹脂であってもよい。

【0052】

溶融成形による複合成形物の場合、内側成分Xとなる第1樹脂(R_1)および外側成分Yとなる第2樹脂(R_2)の融点については、内側成分Xで強度や延伸性を確保し、外側成分Yで機能性をもたせることが多いことから、第1樹脂(R_1)の融点を第2樹脂(R_2)の融点よりも高く（たとえば5℃以上とか10℃以上というように）することができる。特に、外側成分Yの第2樹脂(R_2)としてその融点が低くても溶融成形できるものを使用するときは、外側成分Yに熱融着性をもたせることができる上、溶融成形時の機能性成分(A)中の有効成分の揮散が抑制されるという利点もある。ただし、第1樹脂(R_1)の融点を第2樹脂(R_2)の融点と同等としたり低くしたりしても、機能性成分(A)を主として外側成分Yに含有させるので、その使用量を少なくすることができるという大きな利点がある。従って、第1樹脂(R_1)の融点と第2樹脂(R_2)の融点とをどのように設定するかは自由であり、目的に応じて任意に決めることができる。

【0053】

〈粉板状鉱物(T)の配合の時機〉

微粉板状鉱物(T)の配合の時機については、機能性成分(A)とセラミックス成分(C)との複合体粒子の製造工程中またはその複合体粒子を製造した後の粉碎工程において微粉板状鉱物(T)を配合したものを作製しておき、その配合物を成形用の樹脂またはその原液中に配合することが特に望ましい。ただし、成形用の樹脂またはその原液の調製前または調製中に、機能性成分(A)およびセラミックス成分(C)（特にその複合体粒子）とは別々に微粉板状鉱物(T)を配合することもできる。

【0054】

〈各成分の割合〉

樹脂(R)、あるいは複合成形物の場合の第1樹脂(R_1)または／および第2樹脂(R_2)に内添する各成分の割合は種々に設定できるものの、樹脂成分100重量部に対して、機能性成分(A)、微粉板状鉱物(T)、セラミックス成分(C)の合計量が1～50重量部（好ましくは2～40重量部）となるようにすることが望ましい。後者の合計量が余りに少ないときは所期の消臭性、抗微生物性、生理活性、抗酸化性などの機能性が充分には発揮されず、一方後者の合計量を余りに多くしても、機能性は一定以上には上がらないばかりでなく、成形物の生産性が低下したり、強度や風合が低下したりするというマイナス面が目立つようになる。

【0055】

また、機能性成分(A)とセラミックス成分(C)および微粉板状鉱物(T)との間の関係においては、セラミックス成分(C)および微粉板状鉱物(T)の合計量100重量部に対し機能性成分(A)を1～300重量部（好ましくは2～200重量部、さらに好ましくは3～150重量部）とすることが望ましい。機能性成分(A)の割合が余りに少ないときには所期の消臭性、抗微生物性、生理活性、抗酸化性などの機能性が不足し、機能性成分(A)の割合が余りに多いときには、セラミックス成分(C)および微粉板状鉱物(T)に対するバランスを崩し、コスト的にも不利となる。

【0056】

そしてセラミックス成分(C)と微粉板状鉱物(T)との間の関係においては、セラミックス成分(C)と微粉板状鉱物(T)との合計量を100重量%とするとき、前者が1～40重量%（殊に2～30重量%）に設定することが好ましい。微粉板状鉱物(T)の割合が余りに少ないときは、成形時の二次凝集によるセラミックス成分(C)（またはこれと機能性成分(A)との複合体粒子）の粒径が大きくなることを充分には防止できず、一方微粉板状鉱物(T)の割合が余りに多くなると、円滑成形性が損なわれたり、延伸性等の二次加工性や成形物の物性が低下するようになる。

【0057】

〈複合成形物の場合の留意事項〉

本発明の成形物は、接合型の複合成形物であるときに特に重要である。このときの複合成形物は、内側成分Xと外側成分Yとで構成された接合型の複合成形物であり、接合型としては、芯鞘接合型とバイメタル（サイドバイサイド）接合型が代表的なものとしてあげられる。芯鞘接合型の場合は、内側成分Xが芯成分、外側成分Yが鞘成分となり、このときの構造は、同心円芯鞘型、偏心芯鞘型、多心芯鞘型などのいずれであってもよい。バイメタル接合型の場合は、Y/X、Y/X/Y状などとなる（Y/Xのときは、片方を内側成分X、他方を外側成分Yとする）。

【0058】

複合成形物が芯鞘接合型であるとき、芯成分である内側成分Xと鞘成分である外側成分Yとの重量比は、30：70～80：20、殊に35：65～75：25とすることが好ましい。鞘成分の割合が余りに少ないときには、機能性成分(A)の割合が過小となるので所期の機能性が充分には奏されず、また得られる成形物に熱接着性が要求されるときは熱接着性が不足するようになる。一方、鞘成分の割合が余りに多いときには、相対的に芯成分の割合が過小になるため、成形性（紡糸性等）、延伸性、強度、寸法安定性などの点で不満足となりやすい。

【0059】

複合成形物がバイメタル接合型であるときは、内側成分Xと外側成分Yとの重量比（Y/X/Y状の場合はXと片方のYとの重量比）は、30：70～95：5、殊に35：65～90：10というように、芯鞘接合型の場合よりは内側成分Xの割合を多目にすることができる。

【0060】

複合成形物が芯鞘接合型であるときの代表的な形状はフィラメント状であり、その断面は円形のみならず非円形とすることもできる。場合により、中空状とすることもできる。フィラメントの太さは、極細の繊維状からモノフィラメント状まで（極細デニールから極太デニールまで）、あるいはさらに太い棒状に近いものまで任意である。

【0061】

複合成形物がバイメタル接合型であるときの代表的な形状は、フィルムまたはシートである。それらを細巾にスリットして線条とすることもできる。フィルムまたはシートをスプリット（割繊）することもできる。そのほか、容器状、板状、各種部品形状などとすることもできる。

【0062】

〈成形物および複合成形物の製造法〉

本発明の機能性成形物は、植物由来の機能性成分(A)と、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)とが配合された樹脂(R)またはその原液を、成形に供することにより製造される。成形法としては、熔融成形法、溶液成形法、エマルジョン成形法などがいずれも採用できる。成形物の形状は任意である。

【0063】

機能性成形物が複合成形物であるときは、予め、内側成分となる第1樹脂(R_1)またはその原液、外側成分Yとなる第2樹脂(R_2)またはその原液の少なくとも一方に、機能性成分(A)と、微粉板状鉱物(T)と、その微粉板状鉱物(T)以外のセラミックス成分(C)とを配合しておき、ついで、第1樹脂(R_1)が内側成分X、第2樹脂(R_2)が外側成分Yとなるように共押出して、内側成分Xと外側成分Yとで構成された芯鞘接合型またはY/XまたはY/X/Y状のバイメタル接合型の複合成形物を得ることにより製造される。成形法としては、熔融成形法、溶液成形法、エマルジョン成形法などがいずれも採用できる。共押出成形は、2台またはそれ以上の押出機を用い、複合ダイから線状やシート状に吐出することにより達成できる。場合によっては、回転ダイを用いてネット状に成形することもできる。

【0064】

樹脂(R)、あるいは複合成形物の場合の第1樹脂(R_1)または／および第2樹脂(R_2)のうち、内添材料を配合する樹脂には、特に熔融成形の場合には、予め内添材料の濃度の濃いマスターバッチを作製しておいて、そのマスターバッチを樹脂と混合して成形に供することもできる。樹脂成分には、もし必要なら、酸化防止剤、紫外線吸収剤、着色剤、滑剤、帯電防止剤、艶消し剤、流動性改善剤、可塑

剤、難燃剤などの助剤を内添しておくことができる。特に内添材料を配合した側の樹脂には、特に熔融成形の場合、酸化防止剤等の安定剤と共に、金属石鹼をはじめとする凝集防止性ないし分散性の向上に有効な成形助剤を併用配合して、内添材料の均一分散を確保することが好ましく、また機能性成分(A)の担持性を向上させるため、銅塩、鉄塩、カルシウム塩、チタン塩、アルミニウム塩、銀塩、スズ塩、亜鉛塩、クロム塩、コバルト塩などの金属イオン源を適当量共存させておくこともできる。

【0065】

〈延伸〉

フィラメント状のものを得る場合、成形後は延伸を行うことが多い。延伸倍率に特に限定はないものの、倍率が余りに小さいときは、用途によっては強度が不足する傾向があるので、延伸倍率は3倍以上、殊に4倍以上とするのが通常である。延伸倍率の上限は一般には10倍程度までである。なお、延伸を必要としない用途もあるので、延伸は必須ではない。フィルムまたはシート状のものを得るときも、必要に応じ成形後に延伸を行うことができる。

【0066】

〈応用、用途〉

本発明の成形物（複合成形物を含む）がフィラメント状であるときは、そのフィラメントから、糸、パイル、綿（ワタ）状物、ネット、ロープ、ベルト、織布、不織布、編布などの二次製品を得ることも自在である。この複合フィラメントまたはその二次製品を、天然繊維（木綿、麻、絹、羊毛等）、合成樹脂（ポリエステル、アクリル、ポリプロピレン、ポリエチレン、ナイロン、ビニロン、ポリ塩化ビニリデン、ポリ塩化ビニル、ポリウレタン等）系の繊維やモノフィラメント、半合成繊維（アセテート等）、再生繊維（レーヨン等）、無機繊維（ガラス繊維、炭素繊維等）などの繊維やモノフィラメントあるいはそれらの二次製品と組み合わせて用いることもできる。本発明の成形物（複合成形物を含む）がフィルム、シート、容器などであるときは、それを積層したりするなどして、二次製品を得ることもできる。

【0067】

本発明の成形物（複合成形物を含む）またはその二次製品の用途の例は、乗り物の内装材（シートクロス、天井材、床材）、室内の内装材（壁用シート、床材等）、室内や乗り物の敷物材（マット、カーペット等）、フィルタ（空調機、空気清浄機、真空掃除機等のフィルタ）、ファンやファン周りの成形物、冷蔵庫の内壁パネル、履物材料、産業資材、衣料材料、寝具、衛生材料、医療用品、化粧用部材（パフ等）、日用品、台所用品、浴室・トイレタリー用品、ペット用品、包装材料などである。

【 0 0 6 8 】

〈熱融着品〉

殊に複合成形物である場合、その外側成分 Y に、第 2 樹脂 (R_2) の種類や内添物の量を選択または制御して熱融着性を持たせるようにすれば、熱融着品を得ることができる。たとえば、芯鞘接合型の複合フィラメントや、バイメタル接合型のフィルムを細巾にスリットした線条を用いて、編織物（ネット、織布、編布）や不織布を製造したとき、熱融着によりフィラメントや線条の交叉点を融着することができるので実用時や二次加工時における目ずれを防止することができ、あるいはそのような編織物や不織布を枠体などに熱融着により固定することができる。

【 0 0 6 9 】

【実施例】

次に実施例をあげて本発明をさらに説明する。「部」、「%」とあるのは重量基準で表わしたものである。粒度の測定は、レーザー回折式粒度測定器（株式会社島津製作所製の「SA-CP3」）を用いて行った。

【 0 0 7 0 】

《機能性組成物》

〈材料の準備〉

機能性成分(A)として、次のものを準備した。

・ (A_1): 茶カテキン 30%品（エピガロカテキン、エピガロカテキンガレート、エピカテキンおよびエピカテキンガレートの合計量が約 30% の茶由来のカテキン製剤）

【0071】

セラミックス成分(C)の原料として、次のものを準備した。

- ・(C₁): ケイ酸塩水溶液(水ガラス)

【0072】

微粉板状鉱物(T)として、次のタルク(モース硬度: 約1)を準備した。

- ・(T₁): ドイツから輸入のタルクをそのまま使用。
- ・(T₂): 日本タルク株式会社製の超微粉タルク「SG-2000」(公称平均粒径: 0.97 μm)を篩分けにより分級して、微粒子側を取得。

【0073】

〈混合方法/その1〉

実施例1~2、比較例1

0℃に保った1N硫酸溶液に茶カテキン(A₁)を添加し、また別途1N水ガラス(C₁)の溶液を調製した。ついで、茶カテキン(A₁)を含有する1N硫酸溶液を激しく攪拌しながら、数分かけて1N水ガラス(C₁)溶液を滴下した。このときの反応液は5~7℃となり、シリカが生成した。反応混合物(茶カテキンとシリカとの複合粒子)を試験用ボールミルで湿式粉碎してから、脱水し、50~60℃の温度をかけながら乾燥器中で真空乾燥し、流水にて洗浄してからもう一度乾燥し、ついで試験用ボールミルにて乾式にて細かく砕き、微粉末状の機能性組成物を得た。

【0074】

上記の反応に際しては、水ガラスと茶カテキンとを混合する時点において、

i. 両者の合計量(水ガラスの量はシリカ基準)に対してタルクを外的基準で10%宛、または

ii. 水ガラス(シリカ基準)の10%をタルクで置換して、混合した。比較のため、タルクを混合しない場合についても実験を行った。

【0075】

〈結果〉

原料タルクの粒度分布、タルク無配合およびタルク配合の場合の機能性成分(A)ーセラミックス成分(C)複合粒子の粒度分布を、下記の表1および図1~8に

示す。各図において、(イ)はキュムラティブ・グラフ、(ロ)はディファレンシャル・グラフである。

【0076】

【表1】

	粒 度 分 布		
	無添加	(T ₁)	(T ₂)
原料タルク			
対応図		図 1	図 2
平均粒径 (μm)	-	0.74	0.47
最大粒径 (μm)	-	2	2
比表面積 (m ² /g)	-	2.14	4.91
25%粒径 (μm)	-	1.16	0.65
75%粒径 (μm)	-	0.54	0.33
対原料10%混合品			
対応図	図 3	図 4	図 5
平均粒径 (μm)	12.82	0.69	0.76
比表面積 (m ² /g)	1.07	4.45	3.14
25%粒径 (μm)	10.03	5.36	3.98
75%粒径 (μm)	1.86	0.29	0.37
対シリカ10%置換品			
対応図	図 6	図 7	図 8
平均粒径 (μm)	12.82	0.98	0.90
比表面積 (m ² /g)	1.07	3.33	3.91
25%粒径 (μm)	10.03	2.36	2.37
75%粒径 (μm)	1.86	0.42	0.34

【0077】

上記の結果を対比すると、タルク無添加の図3、図6に比し、(T₁)のタルクを

添加した図 4、図 7、および(T_2)のタルクを添加した図 5、図 8 においては、混合物の粒度分布が明らかに微粒子ないし超微粒子側にあり、二次凝集が有効に防止されていることがわかる。

【 0 0 7 8 】

《機能性樹脂組成物、機能性成形物》

機能性樹脂組成物の代表例としての機能性成形物（複合成形物）を次のようにして製造した。

【 0 0 7 9 】

〈材料の準備〉

第 1 樹脂(R_1)として次のものを準備した。

- ・ (R_1): ポリプロピレン (P P) (融点 1 6 3 °C、比重 0.91)

【 0 0 8 0 】

第 2 樹脂(R_2)として次のものを準備した。

- ・ (R_2): ポリエチレンテレフタレート (P E T) (融点 2 6 5 °C、比重 1.4)

【 0 0 8 1 】

第 2 樹脂(R_2)側に内添する機能性成分(A) として、次のものを準備した。

- ・ (A_1): 先に述べたカテキン (茶カテキン 3 0 % 品)
- ・ (A_2): 純度 7 0 % の茶サポニン
- ・ (A_3): 緑茶粉末
- ・ (A_4): 緑茶の熱水抽出物を乾燥した粉末
- ・ (A_5): 純度 8 5 % のタンニン酸

【 0 0 8 2 】

第 2 樹脂(R_2)側に内添するセラミックス成分(C) の原料として、次のものを準備した。

- ・ (C_1): ケイ酸塩水溶液 (水ガラス)
- ・ (C_2): リン酸アルミニウムおよびコロイダルシリカ
- ・ (C_3): シリカ、リン酸アルミニウムおよびコロイダルシリカ

【 0 0 8 3 】

微粉板状鉱物(T) として、先に述べたタルク(T_1), (T_2)を用いた。

【 0 0 8 4 】

〈機能性成分(A) - セラミックス成分(C) 複合体粒子の準備〉

次のようにして、機能性成分(A) とセラミックス成分(C) との複合体粒子を製造した。そしていずれの場合も、セラミックス成分(C) の原料と機能性成分(A) とを混合する時点において、微粉板状鉱物(T) を添加した。

【 0 0 8 5 】

(その1)

セラミックス成分(C) の原料のうち(C_1)については、0℃に保った1 N硫酸溶液に機能性成分(A) を添加し、また別途1 N水ガラス溶液を調製した。ついで、機能性成分(A) を含有する1 N硫酸溶液を激しく攪拌しながら、数分かけて1 N水ガラス溶液を滴下した。このときの反応液は5～7℃となった。混合液を流水にて1日洗浄してから、水分をよく切り、ついで細かく砕き、50～60℃の温度をかけながら乾燥器中で真空乾燥し、粉末状の複合物を得た。

【 0 0 8 6 】

(その2)

セラミックス成分(C) の原料のうち(C_2)については、濃度25%のリン酸アルミニウム水溶液200部に機能性成分(A) を混合し、pHを3～4に調整して、コロイダルシリカのコロイド液(固形分40%)の130部を加えて混合し、pHを中性にもっていった。スラリーは徐々に凝集していったので、ハンドリングが可能なうちに蒸発皿(またはルツボ)に移し、恒温乾燥器または電気炉で加熱し、100～300℃で乾燥し、加熱処理した。これにより硬い不定形の凝集体が得られたので、それを自動乳鉢(またはボールミル)で微粉碎し、篩で分級して100～325メッシュの粒度のものを取得した。ついでこの凝集体の粒子を恒温乾燥器または電気炉で加熱処理した。

【 0 0 8 7 】

(その3)

セラミックス成分(C) の原料のうち(C_3)については、平均粒径325メッシュアンダーのシリカ400部と、機能性成分(A) 130部とを乾式混合した後、濃度25%のリン酸アルミニウム水溶液200部を添加しながら硬めに混練してペ

ーストを得、このペーストにコロイダルシリカのコロイド液（固形分40%）50部を混合して、pHを中性にもっていった。この時点で徐々に凝集が起きてくるので、ハンドリングできるうちにルツボに移し、乾燥後、100～300℃で脱水、加水分解させた。これを微粉碎した。

【0088】

実施例3～9

第2樹脂(R_2)に、少量の酸化防止剤および凝集防止剤（分散剤）と共に上記（その1）、（その2）、（その3）の方法で得た機能性成分(A)担持セラミックス成分(C)を混合して溶融押出すると共にペレット化した。このようにして得たペレットを外側成分（鞘成分）Y、上記の第1樹脂(R_1)のペレットを内側成分（芯成分）Xとして用いて、複合ダイを備えた2台の押出機により、外側成分（鞘成分）Yについては第2樹脂(R_2)の融点より70～90℃高い温度条件、内側成分（芯成分）Xについては第1樹脂(R_1)の融点より60～90℃高い温度条件をそれぞれ使用して共押出成形し、ついで約6倍に延伸することにより、複合フィラメント（複合成形物）を得た。次に、この複合フィラメントから不織布を製造した。条件を表2に示す。

【0089】

比較例2～3

第2樹脂(R_2)へのセラミックス成分(C)および微粉板状鉱物(T)の内添を省略したほかは、上述の実施例と同様にして共押出し、ついで約6倍に延伸することにより、フィラメント（複合フィラメント）を得、ついで不織布を製造した。条件を表2に併せて示す。

【0090】

比較例4～5

第2樹脂(R_2)への微粉板状鉱物(T)の内添を省略したほかは、上述の実施例と同様にして共押出し、ついで約6倍に延伸することにより、フィラメント（複合フィラメント）を得、ついで不織布を製造した。条件を表2に併せて示す。

【 0 0 9 1 】

【表 2】

	内側成分 X	外側成分 Y				複合体
	(R ₁)	(R ₂)	(A)	(C)	(T)	粒子
比較例 2	(R ₁)50部	(R ₂)46部	(A ₁) 3部	-	-	-
比較例 3	(R ₁)50部	(R ₂)46部	(A ₂) 3部	-	-	-
比較例 4	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)12部	-	その 1
比較例 5	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₂) 3部	(C ₂)12部	-	その 1
実施例 3	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)10部	(T ₁) 2部	その 1
実施例 4	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₂) 3部	(C ₁)10部	(T ₁) 2部	その 1
実施例 5	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₃) 3部	(C ₁)10部	(T ₂) 2部	その 1
実施例 6	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₁) 3部	(C ₂)10部	(T ₁) 2部	その 2
実施例 7	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₄) 3部	(C ₂)10部	(T ₂) 2部	その 2
実施例 8	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₅) 3部	(C ₃)10部	(T ₂) 2部	その 3
実施例 9	(R ₁)50部	(R ₂)35部	(A ₁) 3部	(C ₃)10部	(T ₁) 2部	その 3

【 0 0 9 2 】

〈試験〉

上記で作製した不織布を常温の水中に 3 時間浸漬してから一旦取り出して自然乾燥した後、もう一度水中に 3 時間浸漬してから取り出して自然乾燥し、最初の水浸漬の前および 2 回目の水浸漬の後の機能性成分(A) の量を示差熱重量分析計による熱分析（電気炉中で 5℃/min の速度で昇温し、加熱過程における試料の熱収支（吸熱／発熱）とそれに伴う重量の増減を解析）により測定した。そして、水洗前および後の不織布につき、消臭試験および抗微生物性試験を下記の条件にて行った。また、複合成形物の表面状態（滑らかなものの順に○、□、△）、断面の SEM 像から見た内添物粒子の均一分散性（均一なものの順に○、□、△）とその分散している内添物粒子の細かさ（細かいものの順に○、□、△）についても調べた。結果を表 3 と表 4 に分けて示す。

【0093】

(消臭試験)

1 m³の容器内には外部から操作できる空気清浄機、内部には上記で作製した不織布を設置し、容器の中でタバコ5本を吸煙機に装着して着火し、最初の1本が燃え尽きた時点で吸煙機を停止し、最後のタバコが燃え尽きた時点で空気清浄機の運転を開始し、運転5分後および30分後にガス検知管を用いてアンモニア濃度を測定し、5分後の濃度（初期濃度）に比し30分後の濃度がどの程度減少しているかで脱臭率を求めた。

【0094】

(抗微生物性試験)

下記の条件により、各試料の抗菌性を調べた。

- ・ 試験項目：菌数減少率試験
- ・ 試験方法：統一試験方法による。
- ・ 試験結果：

植菌数 [A] 1.0×10^5 $\log A = 5.0$

無加工布菌数 [B] 1.6×10^7 $\log B = 7.2$

(無加工布は標準綿布を使用)

$\log B - \log A = 2.2 > 1.5$ (試験は有効)

増減値 = $\log C - \log A$

増減値差 = $(\log B - \log A) - (\log C - \log A)$

【0095】

【表3】

	比 較 例			
	2	3	4	5
水洗前				
(A) 含有量 (%)	2.1	2.0	2.6	2.6
水浸漬後				
(A) 含有量 (%)	0.2	0.3	2.4	2.4
NH ₃ 脱臭率 (%)	45	46	71	72
抗菌性				
菌数 log C	6.9	6.9	3.9	3.9
増減値	1.9	1.9	-1.1	-1.1
増減値差	0.3	0.3	3.3	3.3
表面状態 (外観)	○	○	□	□
SEM像				
均一分散性	○	○	□	□
粒子の細かさ	○	○	□	□

(抗菌性試験の試料は 0.2 g を採取)

【0096】

【表4】

	実 施 例						
	3	4	5	6	7	8	9
水洗前							
(A) 含有量 (%)	2.7	2.7	2.6	2.6	2.7	2.6	2.6
水浸漬後							
(A) 含有量 (%)	2.6	2.6	2.5	2.5	2.5	2.5	2.4
NH ₃ 脱臭率 (%)	75	75	73	73	74	72	72
抗菌性							
菌数 log C	3.8	3.9	3.9	3.9	4.0	4.2	3.9
増減値	-1.2	-1.1	-1.1	-1.1	-1.0	-0.8	-1.1
増減値差	3.4	3.3	3.3	3.3	3.2	3.0	3.3
表面状態	○	○	○	○	○	○	○
S E M像							
均一分散性	○	○	○	○	○	○	○
粒子の細かさ	○	○	○	○	○	○	○

(抗菌性試験の試料は 0.2 g を採取)

【0097】

表3、4のように、比較例2～3にあっては、外側層である鞘成分Y側にセラミックス成分(C)（および微粉板状鉱物(T)）を共存させていないので、実施例と比較すると押出成形時に機能性成分(A)のある程度の量が揮散により失われており、かつ水浸漬後の機能性が不十分であることがわかる。なお、機能性成分(A)を内添していない第2樹脂(R₂)のみのフィラメントの延伸品を用いたときのNH₃脱臭率は約40%であり、「測定値-40%」が実質的な脱臭率となる。また比較例4～5においては外側層である鞘成分Y側に微粉板状鉱物(T)を共存させていないので、複合フィラメントの表面状態（外観上の滑らかさ）およびS E

M像を見たときの内添物粒子の均一分散性およびその分散粒子の細かさが、実施例との対比で相対的に劣ることがわかる。

【0098】

《機能性樹脂組成物、機能性成形物》

機能性樹脂組成物の代表例としての機能性成形物（複合成形物）を次のようにして製造した。

【0099】

＜材料の準備＞

第1樹脂(R_1)として次のものを準備した。

- ・(R_1): ポリプロピレン (PP) (融点163℃、比重0.91)
- ・(R_1): ナイロン6 (Ny6) (融点220℃、比重1.13)

【0100】

第2樹脂(R_2)として次のものを準備した。

- ・(R_2): ポリプロピレン (PP) (融点128℃、比重0.91)
- ・(R_2): ナイロン6 (Ny6) (融点220℃、比重1.13)

【0101】

第2樹脂(R_2)側に内添する機能性成分(A)として、次のものを準備した。

- ・(A_1): 先に述べた茶カテキン30%品

【0102】

第2樹脂(R_2)側に内添するセラミックス成分(C)の原料として、次のものを準備した。

- ・(C_1): ケイ酸塩水溶液 (水ガラス)
- ・(C_4): セピオライト

【0103】

微粉板状鉱物(T)として、先に述べたタルク(T_2)を用いた。

【0104】

＜機能性成分(A)－セラミックス成分(C)＞

(C_1)については、先に述べた(その1)に従って、(A_1)との複合体粒子を製造した。
(C_4)については、(A_1)を水に溶解ないし分散させ、そこに(C_4)を投入して

混合してから、乾燥させた（（その４）とする）。

【 0 1 0 5 】

実施例 1 0 ～ 1 4

第 2 樹脂 (R_2) に、少量の酸化防止剤および凝集防止剤（分散剤）と共に、上記（その 1）または（その 4）の方法で得た機能性成分 (A) 担持セラミックス成分 (C) を混合して溶融押出すると共にペレット化した。このようにして得たペレットを外側成分（鞘成分）Y、上記の第 1 樹脂 (R_1) のペレットを内側成分（芯成分）X として用いて、複合ダイを備えた 2 台の押出機により、外側成分（鞘成分）Y については第 2 樹脂 (R_2) の融点より 7 0 ～ 9 0 ℃ 高い温度条件、内側成分（芯成分）X については第 1 樹脂 (R_1) の融点より 6 0 ～ 9 0 ℃ 高い温度条件をそれぞれ使用して共押出成形し、ついで約 6 倍に延伸することにより、複合フィラメント（複合成形物）を得た。次に、この複合フィラメントから不織布を製造した。条件を表 5 に示す。

【 0 1 0 6 】

比較例 6 ～ 7

上記の第 2 樹脂 (R_2) の方の側に機能性成分 (A) のみを内添したほかは、上述の実施例 1 0 ～ 1 4 と同様にして共押出し、ついで約 6 倍に延伸することにより、フィラメントを得、さらに不織布を製造した。条件を表 5 に併せて示す。

【 0 1 0 7 】

比較例 8 ～ 1 0

第 2 樹脂 (R_2) へのセラミックス成分 (C) の内添のみを省略したほかは、上述の実施例 1 0 ～ 1 4 と同様にして共押出し、ついで約 6 倍に延伸することにより、フィラメント（複合フィラメント）を得、さらに不織布を製造した。条件を表 5 に併せて示す。

【0108】

【表5】

	内側成分 X	外側成分 Y				複合体
	(R ₁)	(R ₂)	(A)	(C)	(T)	粒子
比較例 6	(PP)50部	(PP)46部	(A ₁) 3部	-	-	-
比較例 7	(Ny)50部	(Ny)46部	(A ₁) 3部	-	-	-
比較例 8	(PP)50部	(PP)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)12部	-	その 1
比較例 9	(PP)50部	(PP)35部	(A ₁) 3部	(C ₄)12部	-	その 4
比較例10	(Ny)50部	(Ny)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)12部	-	その 1
実施例10	(PP)50部	(PP)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)10部	(T ₂) 2部	その 1
実施例11	(PP)50部	(PP)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)10部	(T ₂) 2部	その 1
実施例12	(PP)50部	(PP)35部	(A ₁) 3部	(C ₄)10部	(T ₂) 2部	その 4
実施例13	(Ny)50部	(Ny)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)10部	(T ₂) 2部	その 1
実施例14	(Ny)50部	(Ny)35部	(A ₁) 3部	(C ₁)10部	(T ₂) 2部	その 1

【0109】

〈試験〉

以下、実施例3～9の場合と同様の試験を行った。結果を表6および表7に示す。なお、比較例6，7においてはセラミックス成分(C)を内添していないので、表6のSEM像の欄は「-」としてある。

【0110】

【表 6】

	比 較 例				
	6	7	8	9	10
水洗前					
(A) 含有量 (%)	2.1	2.0	2.6	2.6	2.6
水浸漬後					
(A) 含有量 (%)	0.2	0.3	2.4	2.4	2.3
NH ₃ 脱臭率 (%)	45	46	71	72	68
抗菌性					
菌数 log C	6.9	6.9	3.9	3.9	4.1
増減値	1.9	1.9	-1.1	-1.1	-0.9
増減値差	0.3	0.3	3.3	3.3	3.1
表面状態	○	○	□	□	□
SEM像					
均一分散性	—	—	□	□	□
粒子の細かさ	—	—	□	□	□

(抗菌性試験の試料は 0.2 g を採取)

【0111】

【表7】

	実 施 例				
	10	11	12	13	14
水洗前					
(A) 含有量 (%)	2.6	2.4	2.6	2.7	2.6
水浸漬後					
(A) 含有量 (%)	2.4	2.3	2.2	2.3	2.1
NH ₃ 脱臭率 (%)	74	70	70	69	68
抗菌性					
菌数 log C	3.9	3.8	3.9	3.9	4.1
増減値	-1.1	-1.2	-1.1	-1.1	-0.9
増減値差	3.3	3.4	3.3	3.3	3.1
表面状態	○	○	○	○	○
SEM像					
均一分散性	○	○	○	○	○
粒子の細かさ	○	○	○	○	○

(抗菌性試験の試料は 0.2g を採取)

【0112】

実施例15～17

樹脂(R)、機能性成分(A)、セラミックス成分(C)の原料、微粉板状鉱物(T)として、次のものを準備した。

・(R):

ポリプロピレン (PP) (融点163℃、比重0.91)

ナイロン66 (Ny66)

ポリエチレンテレフタレート (PET) (融点265℃、比重1.4)

・(A₁): 茶カテキン30%品

- ・ (C₁): ケイ酸塩水溶液 (水ガラス)
- ・ (T₁): ドイツから輸入のタルク

【 0 1 1 3 】

また、先に述べた (その 1) の手順にて機能性成分 (A) にセラミックス成分 (C) と微粉板状鉱物 (T) とが担持された複合体粒子を得た。

【 0 1 1 4 】

それぞれの樹脂 (R) に、上記で得た複合体粒子を混合して溶融押出すると共に一旦ペレット化した。このペレットを押出機に供給して、樹脂 (R) の融点より約 8 0 ℃ 高い温度条件にて溶融押出を行ってフィラメント (モノフィラメント) を得、そのフィラメントから不織布を作製した。

【 0 1 1 5 】

いずれの場合も成形性は円滑であり、得られたフィラメントの表面状態 (滑らかさ) は良好で、そのフィラメントの断面の S E M 像では、内添物粒子の均一分散性およびその分散粒子の細かさが良好であることが確認できた。

S E M 像

均一分散状態 : ○

粒子の細かさ : ○

【 0 1 1 6 】

また得られた不織布は、下記のように、水浸漬後もすぐれた消臭性および抗微生物性を有していた。

水浸漬後の N H₃ 脱臭率

7 0 ~ 7 3 %

水浸漬後の抗菌性

菌数 log C : 3.8 ~ 4.2

増減値 : -1.0 ~ -1.2

増減値差 : 3.0 ~ 3.4

【 0 1 1 7 】

実施例 1 8

機能性成分 (A) として先に述べた茶カテキン 3 0 % 品 (A₁)、セラミックス成分

(C) の原料としてケイ酸塩水溶液（水ガラス）(C₁)、微粉板状鉱物(T) として微粉グレードのマイカ(T₃)をそれぞれ準備した。そして先に述べた（その1）の手順にて機能性成分(A) にセラミックス成分(C) と微粉板状鉱物(T) とが担持された複合体粒子を得た。ただしこのとき、セラミックス成分(C) としての平均粒子径0.23 μ m の微粒子状の酸化亜鉛を、水ガラスに対してシリカ基準で10%併用した。

【0118】

樹脂(R) としてポリオール成分およびポリイソシアネート成分とからなるポリウレタン原料を準備し、また助剤としてシリコーン消泡剤、触媒および発泡剤（水）を準備し、ポリオール成分の側に上記で得た複合体粒子を7%配合してから、常法に従い発泡ポリウレタン（ポリウレタンフォーム）を製造した。

【0119】

このようにして得たポリウレタンフォームは、抗微生物性および消臭性が良好であり、肌触りもよいので、たとえば化粧用パフやフィルタなどとして好適である。

【0120】

【発明の効果】

本発明によれば、植物由来の機能性成分(A) とセラミックス成分(C) との混合系において、低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T) を共存させるという工夫を講じているため、上記の混合系における粒子の二次凝集による粒径の増大を有効に防止した機能性組成物（殊に機能性成形物）を提供することができる。

【0121】

そしてたとえば成形物としたときには、添加剤粒子が樹脂相中に微細かつ均一に分散するので、成形性、後加工性（延伸性等）、物性（強度、寸法安定性等）、外観などの点で、極めて好ましい結果が得られ、さらにはすぐれた消臭性、抗微生物性が得られる。加えて、機能性成分(A) がセラミックス成分(C) と共存して定着および耐水化固定がなされている状態にあるため、内添した機能性成分(A) の成形時の揮散や成形物とした後のブリードアウトが効果的に抑制される上、その消臭性、抗微生物性は、その成形物を水と接触する使い方をしたときも容易

には失われず、その機能性が長期にわたり持続する。セラミックス成分(C)の存在は、温湿度変化などの環境変化に対する成形物の寸法安定性や耐熱性の向上にも貢献する。

【0 1 2 2】

特に外側成分Xと内側成分Yとからなる複合成形物の外側成分Xに機能性成分(A)とセラミックス成分(C)とを微粉板状鉱物(T)と共に含有させたときは、機能性成分(A)の内添量を大きく減ずることができるので経済的であり、また外側成分Yに存在する機能性成分(A)により、該成分が本来有する消臭性、抗微生物性などのすぐれた機能性が最大限に発揮され、また内側成分Xにより強度や延伸性が確保される。

【0 1 2 3】

そのほか、機能性成分(A)は茶などに植物に含まれる成分であるので、人体に接触するような使い方をしても安全である。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

原料タルク(T_1)の粒度分布を示したグラフである。

【図 2】

原料タルク(T_2)の粒度分布を示したグラフである。

【図 3】

タルクを共存させないときの機能性成分(A)－セラミックス成分(C)の複合粒子の粒度分布を示したグラフである。

【図 4】

原料タルク(T_1)を共存させたときの機能性成分(A)－セラミックス成分(C)の複合粒子の粒度分布を示したグラフである。

【図 5】

原料タルク(T_2)を共存させたときの機能性成分(A)－セラミックス成分(C)の複合粒子の粒度分布を示したグラフである。

【図 6】

タルクを共存させないときの機能性成分(A)－セラミックス成分(C)の複合粒

子の粒度分布を示したグラフである。

【図 7】

原料タルク (T_1) を共存させたときの機能性成分 (A) - セラミックス成分 (C) の複合粒子の粒度分布を示したグラフである。

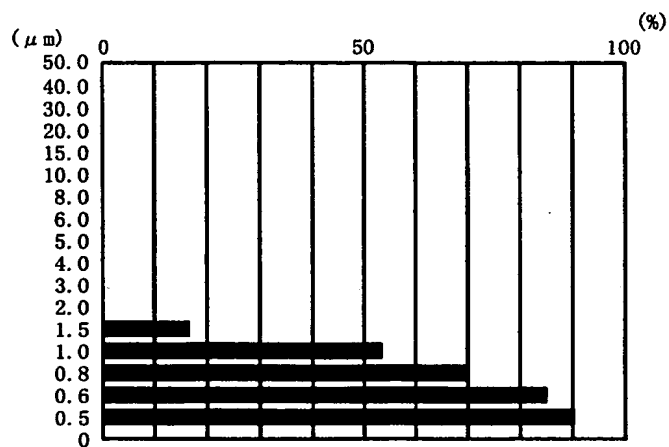
【図 8】

原料タルク (T_2) を共存させたときの機能性成分 (A) - セラミックス成分 (C) の複合粒子の粒度分布を示したグラフである。

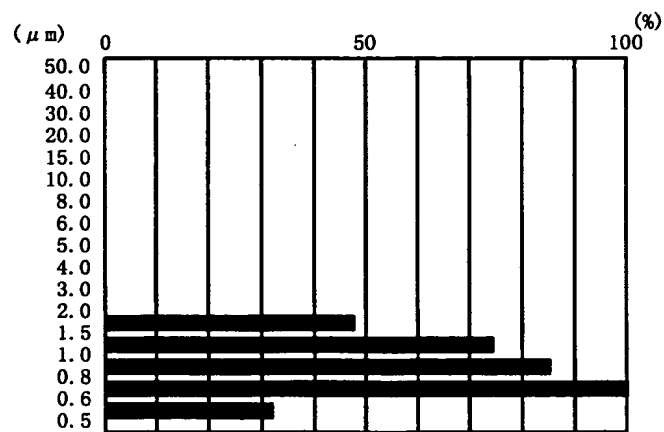
【書類名】 図面

【図 1】

(イ)

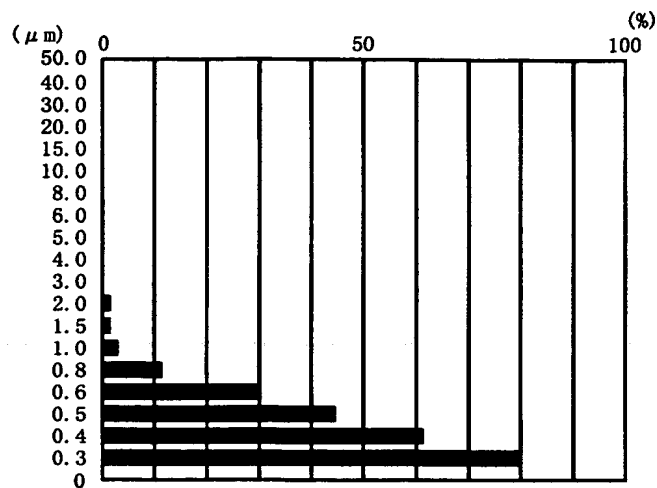


(ロ)

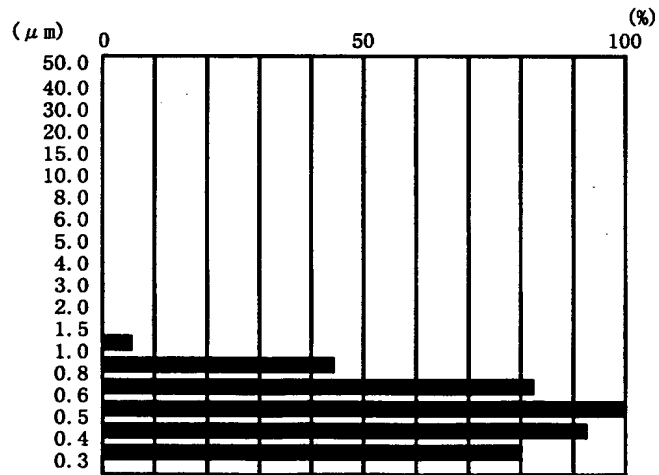


【図 2】

(イ)

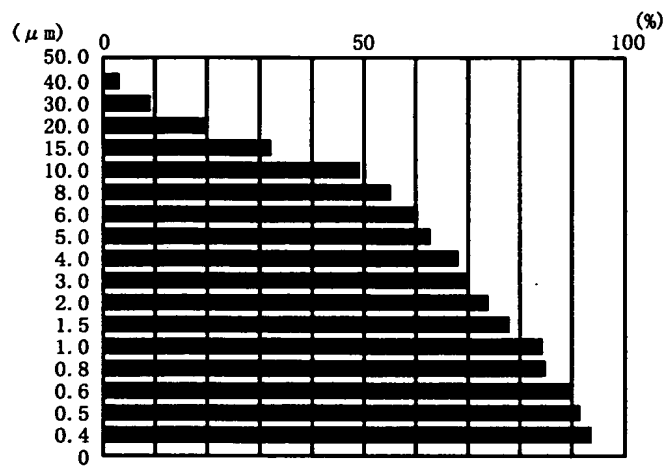


(ロ)

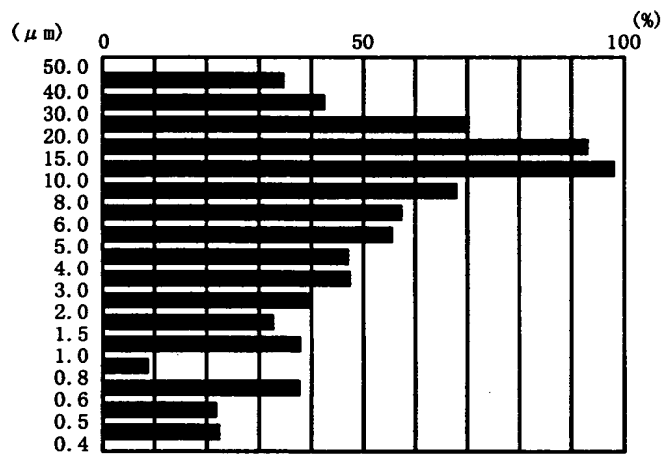


【図 3】

(イ)

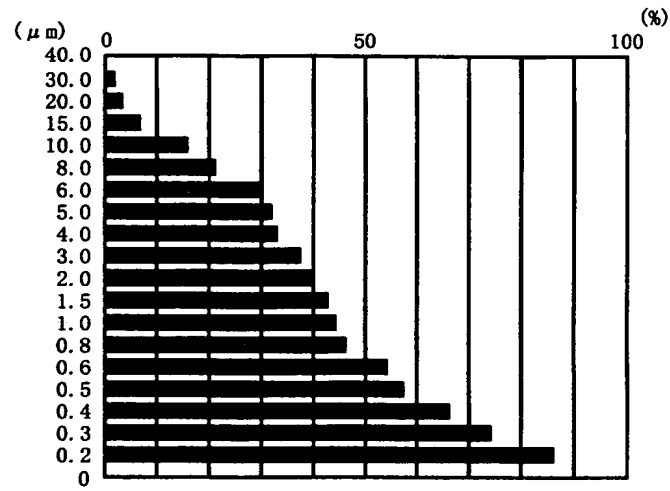


(ロ)

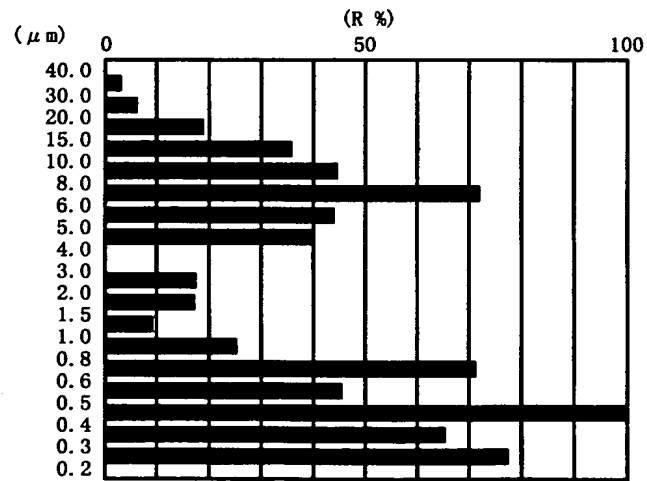


【図 4】

(イ)

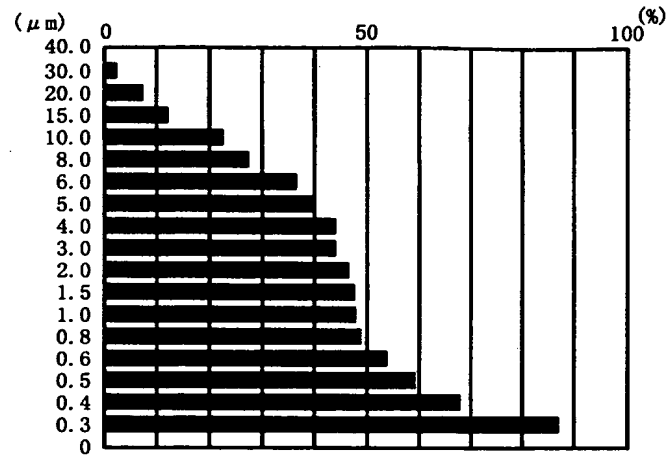


(ロ)

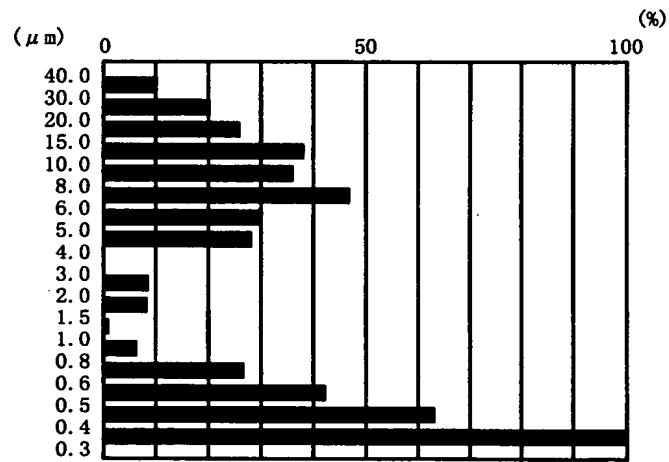


【図5】

(イ)

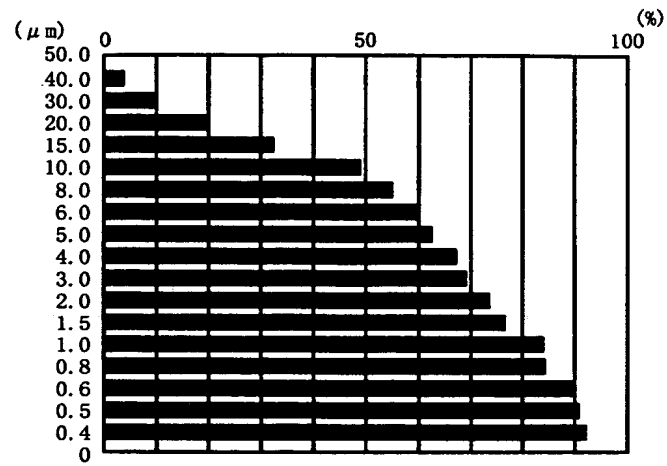


(ロ)

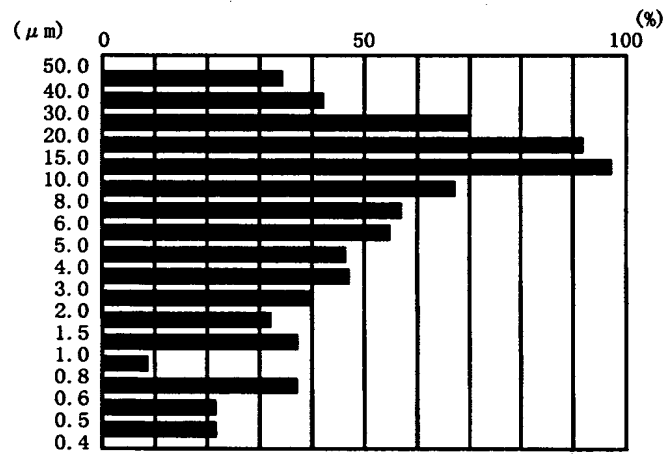


【図 6】

(イ)

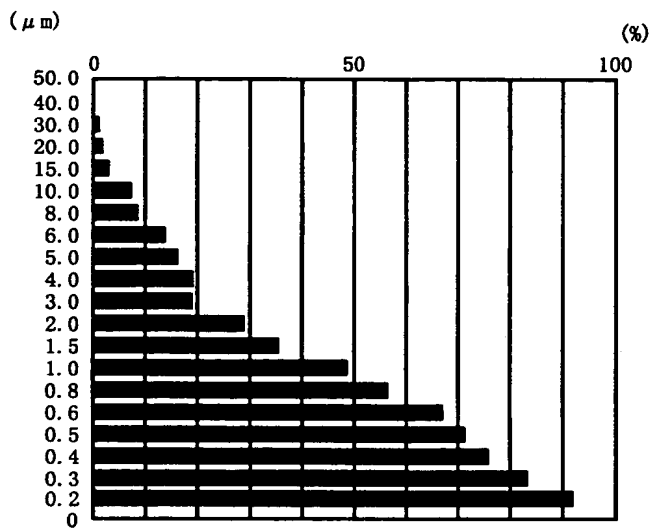


(ロ)

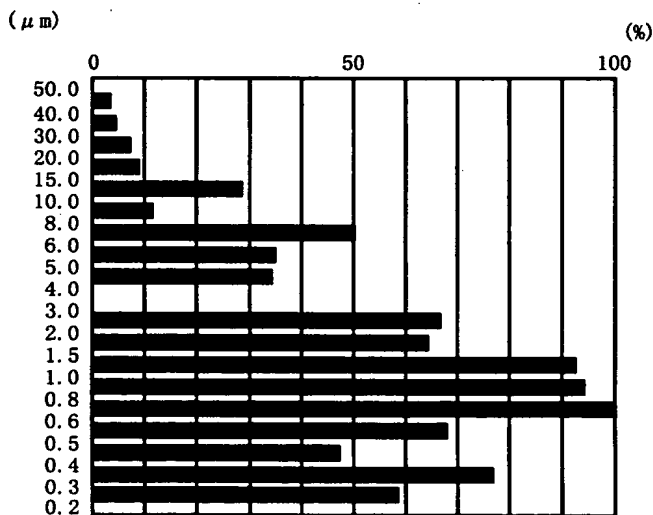


【図 7】

(イ)

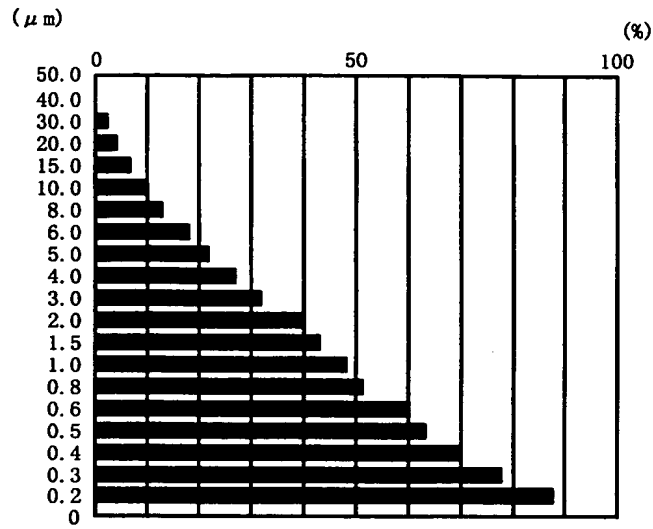


(ロ)

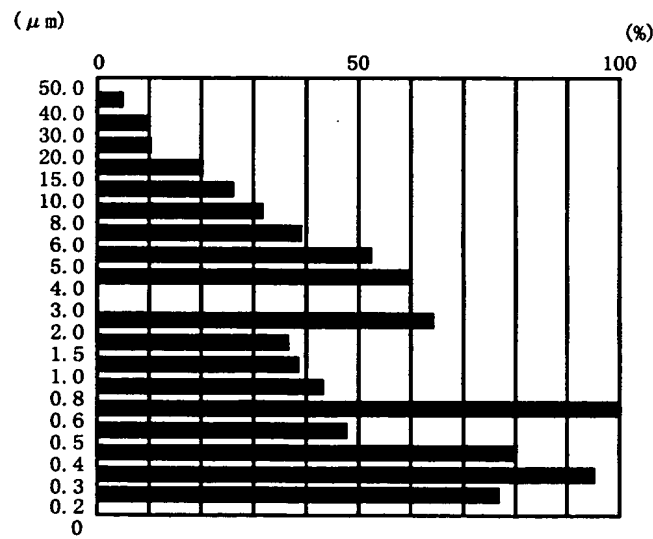


【図 8】

(イ)



(ロ)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 植物由来の機能性成分とセラミックス成分との混合系における粒子の二次凝集による粒径の増大を有効に防止した機能性組成物を提供すること、その混合粒子からなる機能性組成物を用いた種々の用途に応用できる機能性樹脂組成物を提供すること、そして特に、その混合粒子からなる機能性組成物を用いた、消臭性や抗微生物性、成形性、後加工性（延伸性等）、物性などの点ですぐれた機能性成形物を提供することを目的とする。

【解決手段】 カテキン類等の植物由来の機能性成分(A) と、微粉タルク等の低硬度で劈開性を有する微粉板状鉱物(T) と、その微粉板状鉱物(T) 以外のセラミックス成分(C) との混合物からなる機能性組成物である。また上記の各成分と樹脂(R) とからなる機能性樹脂組成物である。さらには、上記の各成分が配合された樹脂(R) の成形物からなる機能性成形物である。この機能性成形物は、芯鞘接合型などの複合成形物であってもよい。

【選択図】 図 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [596087812]

1. 変更年月日 1996年11月11日
[変更理由] 名称変更
住 所 静岡県浜松市寺島町631番地
氏 名 株式会社エルブ